

Characterization and Elemental Analysis of Mina'i Pottery from Alamut Castle Using Scanning Proton Microscope

Davoud Agha-Aligol^{1*}, Melika Yazdani², Mahmoud Moradi¹,
Mohammad Lamei Rashti¹, Seyed Mohammad Amin Emami³

1. Nuclear Science and Technology Research Institute, Physics and Accelerators Research School, Nuclear and Experimental Physics Group, Van de Graaff Laboratory, Tehran, Iran.

2. Art University of Isfahan, Faculty of Handicrafts, Department of Islamic Art, Isfahan, Iran.

3. Art University of Isfahan, Faculty of Conservation and Restoration of Historical Objects, Isfahan, Iran.

Abstract

The measurement of the elemental composition of historical pottery is of particular importance. By examining the elemental composition of the body and glaze of historical pottery, one can obtain valuable information regarding the determination of raw materials and their diversity, as well as techniques employed in the manufacturing of these historical objects. In this research, 12 samples of the mina'i pottery from Alamut Castle, dating back to the 11th to 13th centuries AD, have been studied using ion beam analysis techniques. In this study, the elemental composition of the body, various pigments used in the paintings, and also the baseglaze have been measured using the micro-PIXE. Additionally, the thickness of the gold layer applied on the surfaces of some of these potteries has also been studied using the micro-RBS method. The purpose of conducting this research is to provide appropriate answers to the following questions: What raw materials have been used in the manufacturing of the body and glaze of these objects? What sources have supplied the raw materials used as fluxes? Also, what coloring agents and elements have been used to create different colors in the baseglaze and decorative paintings? Measuring the thickness of the gold layer used in these decorations is also one of the goals of this research work. Based on the results obtained from the elemental composition of the body and glaze of these potteries, it can be concluded that different sources of silica and fluxes have been used in the manufacturing of Alamut Castle mina'i potteries. Also, the coloring agents in producing red, white, blue, and turquoise pigments have been identified as Fe, Sn, Co and Cu elements, respectively. Moreover, the micro-RBS shows that the thickness of the gold layer used in decorations varies from 300 to 800 nanometers in the samples.

Keywords: Mina'i; Alamut Castle; Elemental composition; Micro-PIXE; Gilding layer.



**Knowledge of
Conservation and
Restoration**

Vol. 7(1) No.19
May 2024

<https://kcr.richt.ir>

Pages: 55 to 74

Corresponding Author

Davoud Agha-Aligol

Nuclear Science and
Technology Research Institute,
Physics and Accelerators
Research School, Nuclear and
Experimental Physics Group,
Van de Graaff Laboratory,
Tehran, Iran.

Email

daghaaligol@aeoi.org.ir

مشخصه‌یابی و آنالیز عنصری سفال‌های مینایی دژ الموت با استفاده از میکروسکوپ روبشی پروتون

داود آقاعلی گل^{۱*}، ملیکا یزدانی^۲، محمود مرادی^۱، محمد لامعی رشتی^۱، سید محمد امین امامی^۳

۱. پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای، پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، گروه فیزیک هسته‌ای و تجربی، آزمایشگاه واندوگراف، تهران، ایران.

۲. دانشگاه هنر اصفهان، دانشکده صنایع دستی، گروه هنر اسلامی، اصفهان، ایران.

۳. دانشگاه هنر اصفهان، دانشکده حفاظت و مرمت، گروه مرمت اشیا تاریخی و فرهنگی، اصفهان، ایران.

چکیده

شناسایی و اندازه‌گیری عناصر سازنده ترکیبات سفالینه‌های تاریخی از اهمیت خاصی برخوردار است. با بررسی ترکیبات عنصری بدنه و لعاب زمینه سفالینه‌های تاریخی می‌توان اطلاعات بسیار ارزنده‌ای در زمینه تعیین مواد اولیه مورد استفاده در ساخت و تنوع آن‌ها و همچنین فن‌شناسی این اشیاء تاریخی به دست آورد. در این پژوهش ۱۲ نمونه از سفال‌های مینایی و لاجوردینه دژ الموت که قدمت آن‌ها به سده ۶-۷ هجری قمری برمی‌گردد، با استفاده از روش‌های آنالیز با باریکه‌ی یونی مطالعه شده است. در این مطالعه ترکیبات عنصری بدنه، رنگ‌دانه‌های مختلف استفاده شده در نقاشی‌ها و همچنین لعاب زمینه با استفاده از روش میکروپیکسی اندازه‌گیری شده‌اند. همچنین ضخامت لایه زراندود به کار رفته بر روی سطوح تعدادی از این سفال‌ها نیز با استفاده از روش Micro-RBS مطالعه شده‌اند. مهم‌ترین اهداف پژوهش پیش رو، دستیابی به عناصر تشکیل‌دهنده و مواد اولیه استفاده شده در ساخت بدنه، لعاب زمینه و نوع رنگ‌دانه‌ها در ترسیم نقوش سفال‌های مینایی و لاجوردینه است. اندازه‌گیری ضخامت لایه زراندود به کار رفته در این تزیینات نیز یکی دیگر از اهداف پژوهش است. براساس نتایج به‌دست آمده از بررسی ترکیبات عنصری بدنه و لعاب زمینه این سفال‌ها می‌توان دریافت که در ساخت نمونه‌های دژ الموت از منابع مختلف سیلیس و گدازآورها استفاده شده است. همچنین با بهره‌گیری از نقشه توزیع عنصری به‌دست آمده از روش میکروپیکسی، عامل عنصری ایجاد و تولید رنگ‌دانه‌های قرمز، سفید، لاجوردی و فیروزه‌ای به ترتیب؛ آهن، قلع، کبالت و مس مشخص شده‌اند. ضخامت لایه زراندود استفاده شده در تزیینات نیز از ۳۰۰ تا ۸۰۰ نانومتر در نمونه‌ها متغیر است.

واژگان کلیدی: سفال مینایی، لاجوردینه، دژ الموت، ترکیبات عنصری، میکروپیکسی، لایه زراندود.



فصل‌نامه دانش حفاظت و مرمت

سال هفتم، شماره ۱

شماره پیاپی ۱۹، بهار ۱۴۰۳

<https://kcr.richt.ir>

صفحات: ۵۵ تا ۷۴

نویسنده مسئول

داود آقاعلی گل

پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای،
پژوهشکده فیزیک و شتابگرها، گروه
فیزیک هسته‌ای و تجربی، آزمایشگاه
واندوگراف، تهران، ایران.

رایانامه

daghaaligol@aeoi.org.ir.

مقدمه

سفال مینایی جزء گروهی از سرامیک‌های لعاب‌دار دوره اسلامی است که برای تزیینات آن از ترسیم نقوش بر روی لعاب زمینه سفید یا فیروزه‌ای استفاده شده است. این نقوش شامل تصاویر متنوعی از گیاهان، جانوران و انسان‌ها است. این نوع از سفال‌ها مدت کوتاهی در دوران میانی اسلامی (نیمه دوم قرن دوازدهم میلادی) به‌طور گسترده در ایران و با اقبال کمتری در کشورهای دیگری مانند سوریه و ترکیه رواج داشته است (Mason et al., 2001). درباره‌ی مراکز ساخت سفال مینایی و همچنین دوره‌ی زمانی این نوع از سفال‌ها نظرات مختلفی توسط پژوهشگران اظهار شده است، ولی به‌طور قطع خاستگاه اصلی آن در ایران و کاشان به ثبت رسیده است (Aga-Oglu, 1946; Lane, 1958, pp. 41-42). اخیراً در مقاله گاه‌نگاری سفال‌های مینایی براساس نمونه‌های کتیبه‌دار، به‌طور مفصل توسط یزدانی و همکاران مورد بررسی قرار گرفته است که براساس نتایج به دست آمده می‌توان محدوده زمانی و نیز مکان‌های ساخت این نوع سفال‌ها را بهتر تخمین زد (Yazdani et al., 2017). از نظر پژوهشگران، در ایران، مکان‌های مختلفی به‌عنوان محل تولید سفال مینایی به‌شمار می‌روند که در بین آن‌ها سه شهر کاشان، ری و ساوه بیشتر مورد تأیید پژوهشگران است (Kambakhshfard, 2000, pp. 449-470). براساس سفال‌های مینایی کتیبه‌دار، شکوه نقوش پرکار در این سفال تقریباً شصت سال ادامه یافت و پس از آن، سفال‌های مینایی با نقوش ساده‌تر و لعاب زمینه‌ی آبی و لاجوردی شکل گرفت که این‌گونه سفال لاجوردینه نامیده‌شده و به‌عنوان تداومی از شیوه مینایی معرفی شده است (Yazdani et al., 2015). کاس و همکارانش با بررسی چند سفال لاجوردینه بر این نظر هستند که گستره‌ی رنگی لعاب زمینه این آثار را آبی تیره تا لاجوردی تشکیل می‌دهد که دارای یک فرایند پخت دو مرحله‌ای تکمیلی مشابه مراحل پخت مینایی هستند (Koss et al., 2009).

ویلسن در مورد شکل‌گیری سفال لاجوردینه در ایران می‌نویسد: پس از آنکه محصولات مینایی کاشان شهرت زیاد یافت، هنرمندان دست به تولید انبوه

زدند و به‌تدریج سفال مینایی از نظر جنس، کیفیت پخت، طراحی نقوش و غیره رو به افول نهاد- و گونه‌ای دیگر از رو لعابی با نام لاجوردینه و با تزیینات ساده‌تر جایگزین آن شد (Wilson, 1992, pp. 144). همچنین می‌توان گفت که فرایند گذر مینایی به لاجوردینه، آزادی اجتماعی هنرمند برای بهره‌مندی از خلاقیت هنرمندان، تنوع مخاطبان و تولیدات، پیشرفت و همگام شدن با جامعه برای پاسخ‌گویی به سلیقه و تقاضا در بازار بوده است (Koss et al., 2009).

در پژوهش پیش‌رو ۱۲ نمونه سفال مینایی و لاجوردینه، شامل ۸ نمونه سفال مینایی با شناسه A1, A2, A3, A4, A5, A8, A10 و A11 و ۴ نمونه سفال لاجوردینه با شناسه A6, A7, A9 و A12 بررسی شده‌اند. آنالیز و شناسایی ترکیب عنصری نمونه‌های باستانی و تاریخی با انجام آنالیزهای دستگاهی مختلفی مانند: Micro-PIXE, XRF و SEM-EDX امکان پذیر است (Henderson, 2000, pp. 14-21). در این بین، آنالیز عنصری سفالینه‌های تاریخی با استفاده از میکروپیکسی به‌دلیل برخی از مزایای این روش مانند دقت اندازه‌گیری بالا و شناسایی هم‌زمان تمام عناصر بالاتر از سدیم با دقت ppm، یکی از بهترین و پرکاربردترین روش‌ها در شناسایی ترکیبات عنصری این نمونه‌ها است (Nastasi et al., 2014, pp. 157-160).

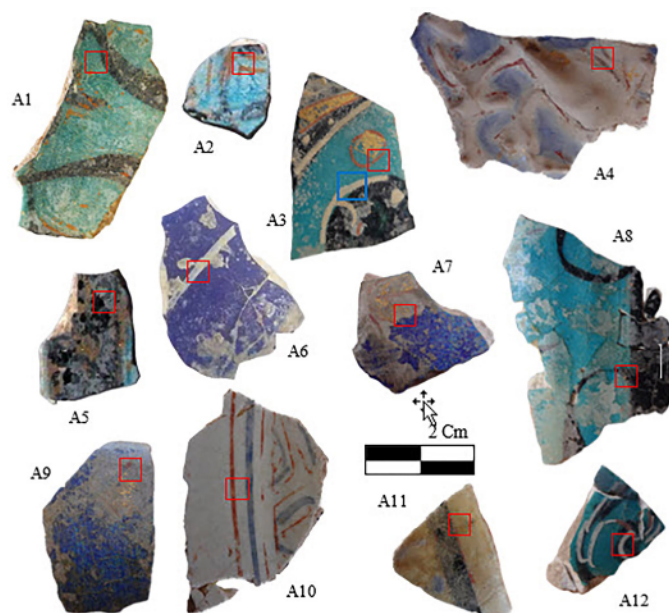
نمونه‌های موردنظر، در این پژوهش که از کاوش‌های علمی فصل هفتم در دژ الموت و زیر نظر دکتر حمیده چوبک به دست آمده، با استفاده از میکروسکوپ روبشی پرتوتون مطالعه شده است. توجه به نتایج آنالیزهای عنصری و ویژگی‌های منطقه‌ی الموت می‌تواند، نتایج منحصربه‌فردی را در مورد تولید این آثار در اختیار قرار دهد. الموت نام یکی از بخش‌های کوهستانی شمال قزوین است که از سمت شمال به کوهستان مازندران، از جنوب به طالقان، از شرق به گردنه معروف به شیربشم و از غرب به رودبار محمد زمان‌خانی یا خشکه رودبار مرتبط است. دژ الموت نیز بر سر کوهی در شمال شرقی گازرخان واقع شده است (Sotūdeh, 1955).

هدف از بررسی و مطالعه‌ی این نمونه‌ها، اندازه‌گیری ترکیبات عنصری بدنه، لعاب زمینه و رنگ‌دانه‌های مختلف استفاده‌شده در تزیینات سطحی این نمونه‌ها است. در اغلب این نمونه‌ها علاوه‌بر نقاشی‌ها و رنگ‌های مختلف، از لایه‌های نازک طلا نیز برای تزیینات سطحی استفاده شده است که اندازه‌گیری ضخامت لایه‌های طلا بر روی سطوح این نمونه‌ها نیز مورد بحث و بررسی قرار گرفته است.

مشخصات نمونه‌های مورد بررسی

در این پژوهش با توجه به ریخت‌شناسی، شکل ظاهری و تزیینات سطحی سفالینه‌ها، ۱۲ نمونه در دسترس مینایی و لاجوردینه با توجه به حداکثر تنوع، جهت انجام مطالعات آزمایشگاهی انتخاب و مورد بررسی قرار گرفته است. در اغلب این نمونه‌ها علاوه‌بر نقاشی‌های مختلفی که بر سطح نمونه‌ها ترسیم‌شده، از لایه‌ی زراندود و برجسته نیز برای تزیین استفاده شده است. تصاویر نمونه‌های مطالعاتی این پژوهش در شکل ۱ مشاهده می‌شود که نواحی مختلف مورد آنالیز با استفاده از مربع قرمز رنگ نشان داده شده است.

دژ الموت در دیلم در حدود ۳۵ کیلومتری شمال شرقی قزوین در منطقه رودبار قرار دارد. این دژ بر فراز صخره‌ای بلند و دره‌ای حاصلخیز در دامنه‌ی جنوبی کوه‌های البرز مرکزی ساخته شده است. دسترسی به قلعه ظاهراً تنها از طریق مسیری باریک، شیب‌دار و پر پیچ‌وخم در جبهه شمالی صخره الموت امکان‌پذیر بوده است (Daftary, 2007, pp.317-318). این دژ با شماره ۷۲۵۲ در فهرست آثار ملی ایران به ثبت رسیده است. از دید چوبک، از کاوش‌های فصل هفتم در این محوطه باستان‌شناسی علاوه بر سازه‌ها و آرایه‌های معماری، سفال‌های بی‌شماری همانند زرین‌فام، مینایی، لاجوردی، قلم‌مشکی و نقاشی زیر لعابی به دست آمده که متعلق به سده پنجم تا سده هفتم هجری قمری است که تاکنون مورد پژوهش قرار نگرفته است. به گفته ایشان، جدیدترین یافته‌ها در زمینه سرامیک مینایی از کاوش‌های اخیر در دژ الموت به دست آمده است. از دیدگاه وی تاکنون شواهدی که نشان‌دهنده تولید آثار در این دژ باشد، یافت نشده است و به‌دلیل موقعیت سیاسی دژ الموت، احتمال وارداتی بودن این آثار وجود دارد (Choubak, 2009).



شکل ۱. تصاویر نمونه‌های مورد بررسی و نواحی مختلف آنالیز که با استفاده از مربع در تصاویر نشان داده شده است.

Figure 1. Images of the samples under investigation and the various analysis areas, which are indicated using squares in the sample images.

روش پژوهش

با استفاده از باریکه‌ی میکرونی از ذرات پرانرژی می‌توان توانایی‌ها و قابلیت‌های آنالیز با استفاده از باریکه‌ی یونی متداول را به میزان زیادی افزایش داد. در این حالت با استفاده از باریکه میکرونی می‌توان سطح نمونه مورد بررسی را جاروب (اسکن) کرد و تصویری دو بعدی از توزیع عنصری موجود در نمونه را با استفاده از روش‌های مختلف آنالیز با باریکه‌ی یونی به دست آورد (Nastasi et al., 2014, pp.157-160). در این پژوهش از روش‌های micro-PIXE و micro-RBS برای مطالعه سفالینه‌های مینایی و لاجوردینه دژ الموت استفاده شده است. آنالیز عنصری به روش میکروپیکسی یکی از روش‌های متداول در آنالیز عنصری مواد است. میکروپیکسی یا "گسیل پرتو X" در اثر برانگیختگی با باریکه‌ی میکرونی پروتون "روش توانمندی برای آنالیز بس عنصری (از سدیم تا اورانیوم) نمونه‌های مختلف است. در روش میکروپیکسی، نمونه مورد بررسی تحت تابش باریکه‌ی میکرونی پروتون قرار می‌گیرد. در اثر برخورد پروتون با اتم هدف، پرتو X مشخصه‌ای گسیل می‌شود که انرژی این پرتو X، نوع عنصر موجود در نمونه و تعداد پرتوهای X با انرژی معین، غلظت عنصر در نمونه را مشخص می‌کند (Johansson & Campbell, 1989, pp.101-104). همچنین با استفاده از باریکه‌ی میکرونی می‌توان برای لایه‌های نازکی که باریکه‌ی یونی قادر به عبور از آن لایه هستند، اطلاعات مفیدی در مورد ضخامت لایه‌های نازک و همچنین توزیع عمقی عناصر تشکیل‌دهنده این لایه‌ها به دست آورد که به این روش، micro-RBS یا "طیف‌نگاری با استفاده از پراکندگی ذرات برگشتی" گفته می‌شود. این روش آنالیز، بر پایه آشکارسازی ذرات یونی که به طور کثرت به وسیله هسته‌های اتم‌های موجود در نمونه مورد آنالیز پراکنده می‌شوند استوار است (Jeynes & Colaux, 2016). در این روش باریکه‌ی ای از یون‌ها، با انرژی مشخص به نمونه مورد آنالیز برخورد کرده و در عمق نمونه حرکت می‌کنند و این یون‌های فرودی در اثر برخورد با اتم‌های نمونه هدف، انرژی خود را به تدریج در طول مسیرشان از دست داده و پراکنده

می‌شوند. یون‌های پراکنده شده در جهت عقب توسط آشکارساز حساس به ذره که به آن آشکارساز سد سطحی گفته می‌شود، آشکار شده و از طیف به دست آمده اطلاعات مفیدی در مورد جنبه‌های مختلف نمونه هدف به دست می‌آید (Beck et al., 2011).

در این پژوهش باریکه‌ی پروتون با انرژی 2MeV و با شدتی در حدود 50pA که توسط شتاب‌دهنده واندوگراف 3MV آزمایشگاه واندوگراف پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای تولید می‌شود، استفاده شده است. قطر باریکه‌ی پروتون با استفاده از دستگاه میکروباریکه‌ی یونی ساخته شده توسط شرکت آکسفورد در این آزمایش در حدود ۱۰ میکرومتر تنظیم می‌شود. برای آشکارسازی اشعه X از آشکارساز (Si Li) که در زاویه ۱۳۵ درجه نسبت به پرتوهای پروتون فرودی قرار گرفته و دارای قدرت تفکیک 150eV است، استفاده شده است. همچنین از آشکارساز سد سطحی سیلیکون که در زاویه ۱۶۰ درجه نسبت به امتداد باریکه‌ی فرودی قرار می‌گیرد برای آشکارسازی پروتون‌هایی که به عقب پراکنده می‌شود استفاده شده است. برای محاسبه میزان غلظت و درصد وزنی عناصر تشکیل‌دهنده بدنه و رنگ‌دانه‌های مختلف استفاده‌شده در نقاشی‌ها و همچنین لعاب‌های به کار رفته روی بدنه سفال‌ها طیف‌های به دست آمده، وارد کد GUPIXWIN می‌شود. این کد با پردازش غیرخطی طیف به دست آمده و با استفاده از پارامترهای فیزیکی معلوم مانند شرایط آزمایش، نوع آشکارساز، اتاقک آزمایش، سطح مقطع یونی‌زاسیون عناصر مختلف و با انجام اصلاحات لازم، میزان غلظت وزنی عناصر تشکیل‌دهنده نمونه مورد بررسی را محاسبه می‌کند (Fernandes et al., 2018).

یافته‌ها و بحث

نتایج آنالیز عنصری بدنه

نتایج آنالیز عنصری بدنه سفال‌های آنالیزشده از دژ الموت با استفاده از روش میکروپیکسی بر حسب درصد وزنی و به صورت اکسید در جدول ۱ ارائه شده است. عناصری که در همه نمونه‌های آنالیز شده اندازه‌گیری شده است، شامل: اکسید سدیم (Na₂O)، اکسید منیزیم (MgO)، اکسید آلومینیوم (Al₂O₃).

می شده است (Mason, 2004, pp.5-17). برای بررسی تفاوت‌های موجود در ترکیبات تشکیل دهنده و منابع سیلیس استفاده شده در سفالینه‌های آنالیز شده از محوطه‌ی تاریخی دژ الموت، تغییرات درصد وزنی عناصر اصلی تشکیل دهنده بدنه این سفالینه‌ها بررسی شده است. مینا و فرض اصلی این ره‌یافت به این صورت است که در نمونه‌های تولید شده از یک نوع ماده اولیه سیلیس، درصد وزنی عناصری که وجود آن‌ها از سیلیس ناشی می‌شود، دارای ترکیبات عنصری تقریباً مشابهی خواهند بود (Pincé et al., 2019). بر این اساس، در شکل ۲-الف تغییرات درصد وزنی اکسید سیلیسیم بر حسب اکسید آلومینیم و در شکل ۲-ب تغییرات درصد وزنی اکسید آلومینیم بر حسب اکسید کلسیم رسم شده است.

با توجه به شکل ۲-الف مشخص است که میزان درصد وزنی سیلیس در تمام نمونه‌ها به جز نمونه A2 بین ۸۰-۸۶ درصد و میزان اکسید آلومینیم در این نمونه‌ها بین ۳-۷ درصد تغییر می‌کند. در نمونه A2 نیز میزان سیلیس ۵۲ درصد و میزان اکسید آلومینیم حدود ۹ درصد است که در این نمونه از

اکسید سیلیسیم (SiO_2)، اکسید پتاسیم (K_2O)، اکسید کلسیم (CaO)، اکسید تیتانیوم (TiO_2)، اکسید منگنز (MnO) و اکسید آهن (Fe_2O_3) است. همچنین اکسید فسفر (P_2O_5)، اکسید گوگرد (SO_3)، کلر (Cl)، اکسید مس (Cu_2O)، اکسید استرانسیم (SrO) و اکسید سرب (PbO) نیز در برخی از نمونه‌ها اندازه‌گیری شده است. بر پایه نتایج ترکیبات عنصری بدنه، مشخص است که در نمونه‌های آنالیز شده به‌غیر از ۳ نمونه، بقیه نمونه‌ها دارای ترکیبات عنصری تقریباً یکسانی هستند و بدنه این نمونه‌ها در گروه ترکیبات غیر آهکی قرار می‌گیرند. برای بررسی تنوع و نوع مواد اولیه استفاده شده در بدنه اصلی سفالینه‌ها براساس عناصر شاخص و تعیین کننده، از نمودارهای پراکندگی دو بعدی براساس نتایج ترکیبات عنصری ارائه شده در جدول ۳ استفاده می‌شود.

همان‌طور که در جدول ۱ مشاهده می‌شود، اکسید سیلیسیم (سیلیس) عمده‌ترین ماده‌ی تشکیل دهنده بدنه سفال‌های مینایی و لاجوردینه دژ الموت است. برای تهیه ماده‌ی اولیه سیلیس در سفالینه‌های تاریخی معمولاً از خاک رس و یا خمیر سنگ^۱ استفاده

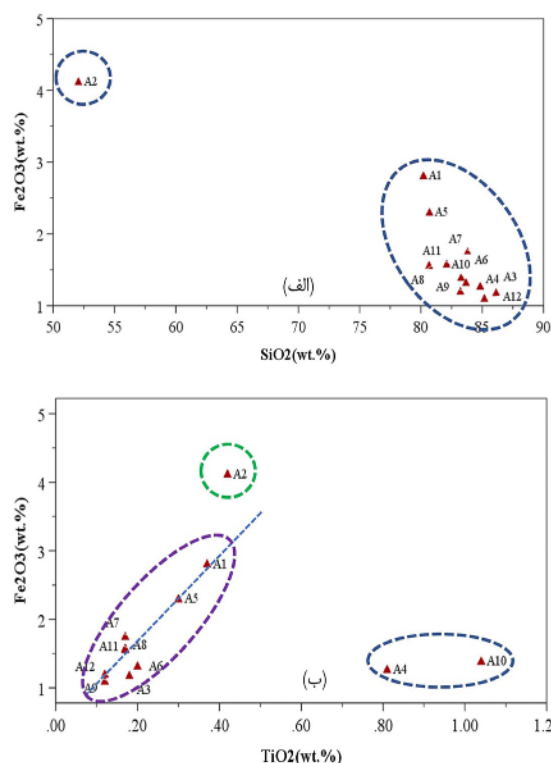
جدول ۱. ترکیبات عنصری بدنه سفالینه‌های مینایی و لاجوردینه دژ الموت به صورت اکسید و بر حسب درصد وزنی (wt%) با استفاده از روش میکروویکسی.

Table 1. Elemental compositions of the body of Mina'i and Lajvardina pottery from Alamut Castle in the form of oxides and in terms of weight percentage (wt%) using the micro-PIXE method.

PbO	SrO	Cu ₂ O	Fe ₂ O ₃	MnO	TiO ₂	CaO	K ₂ O	Cl	SO ₃	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	Na ₂ O	Sample
-	-	0.13	2.8	0.09	0.37	4.88	0.74	-	-	80.2	5.36	3.28	2.15	A1
-	0.06	0.09	4.11	0.06	0.42	11.32	1.39	0.16	18.4	52.06	8.63	2.5	0.76	A2
-	-	0.09	1.17	0.03	0.18	2.64	1.05	-	-	86.13	3.6	3.1	2.01	A3
0.79	0.17	0.02	1.26	0.02	0.81	2.01	0.95	0.23	-	84.83	5.4	0.72	2.79	A4
-	0.16	0.08	2.29	0.05	0.3	4.49	0.69	0.11	-	80.69	5.17	3.4	2.51	A5
-	-	0.02	1.31	0.03	0.2	2.92	0.94	0.07	-	83.67	5.34	2.91	2.59	A6
-	-	0.03	1.74	0.05	0.17	3.05	1.11	-	-	83.8	4.91	2.95	2.19	A7
-	0.11	0.07	1.55	0.03	0.17	3.81	0.75	0.11	0.72	80.66	5.93	3.34	2.75	A8
-	-	0.03	1.19	0.03	0.12	3.2	1.39	0.14	-	83.21	5.14	3.15	2.4	A9
0.31	-	-	1.38	0.02	1.04	1.63	1.47	0.33	-	83.27	6.7	0.9	2.95	A10
-	-	-	1.57	0.02	0.17	3.2	1.37	-	0.27	82.1	5.33	3.67	2.3	A11
-	-	0.04	1.09	0.02	0.12	2.26	0.75	0.09	-	85.17	4.56	3.42	2.48	A12

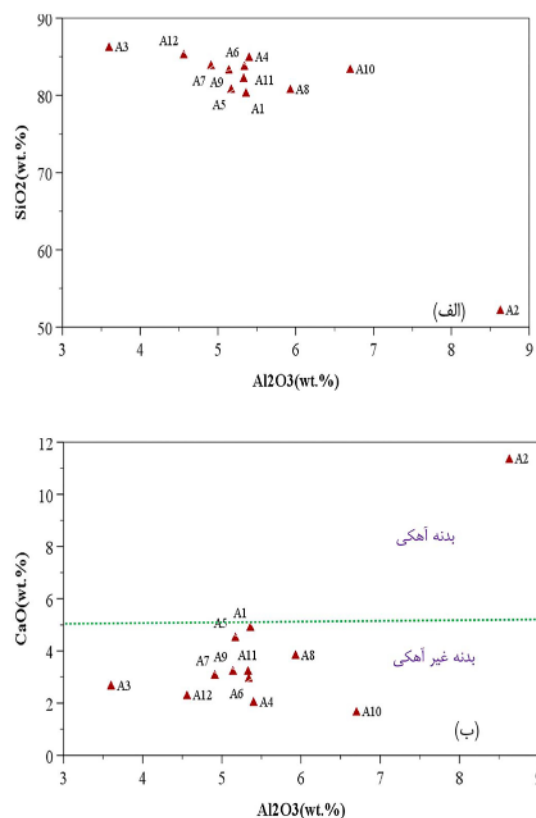
کلسیم در بدنه نمونه A2 نشان می‌دهد که در ساخت بدنه این نمونه از منابع آهکی استفاده شده است (De Bonis et al., 2017).

در شکل ۳-الف نیز مشخص است که براساس تغییرات اکسید آهن بر حسب اکسید سیلیسیم ترکیبات بدنه نمونه‌های آنالیز شده یکسان هستند. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود به‌جز نمونه A2 در غالب نمونه‌های آنالیز شده میزان اکسید آهن کمتر از ۱/۵ درصد و در برخی از نمونه‌ها بین ۱-۳ درصد متغیر است. اما در نمونه A2 اکسید آهن بیشتر از ۴ درصد وزنی است. از طرف دیگر همان‌گونه که در شکل ۳-ب براساس تغییرات درصد وزنی اکسید تیتانیوم بر حسب



شکل ۳. الف) تغییرات درصد وزنی اکسید سیلیسیم بر حسب اکسید آهن، ب) تغییرات درصد وزنی اکسید تیتانیوم بر حسب اکسید آهن، در بدنه اصلی نمونه‌های آنالیز شده از دژ الموت.

Figure 3. a) Variations in the weight percentage of silicon oxide based on iron oxide, b) Variations in the weight percentage of titanium oxide based on iron oxide, in the main body of the analyzed samples from Alamut Castle.



شکل ۲. الف) تغییرات درصد وزنی اکسید سیلیسیم بر حسب اکسید آلومینیم، ب) تغییرات درصد وزنی اکسید آلومینیم بر حسب اکسید کلسیم، در بدنه اصلی نمونه‌های آنالیز شده از دژ الموت.

Figure 2. a) Variations in the weight percentage of silicon oxide based on aluminum oxide, b) Variations in the weight percentage of aluminum oxide based on calcium oxide, in the main body of the analyzed samples from Alamut Castle.

منابع خاک رس با درصد وزنی بالایی از آلومینا استفاده شده است (Tite, Wolf, & Mason, 2011). همچنین در شکل ۲-ب مشخص است که در تمام نمونه‌های آنالیز شده به‌جز نمونه A2 میزان اکسید کلسیم بین ۲-۵ درصد متغیر است. اما در نمونه A2 میزان اکسید کلسیم حدود ۱۲ درصد وزنی است. بنابراین، مشاهده می‌شود که درصد وزنی اکسید کلسیم در اکثر این نمونه‌ها بسیار پایین و کمتر از ۵ درصد وزنی است که این نشان‌دهنده این است که از منابع سیلیس غیر آهکی در ساخت بدنه این نمونه‌ها استفاده شده است. (Holakooei et al., 2013). اما مقدار بالای اکسید

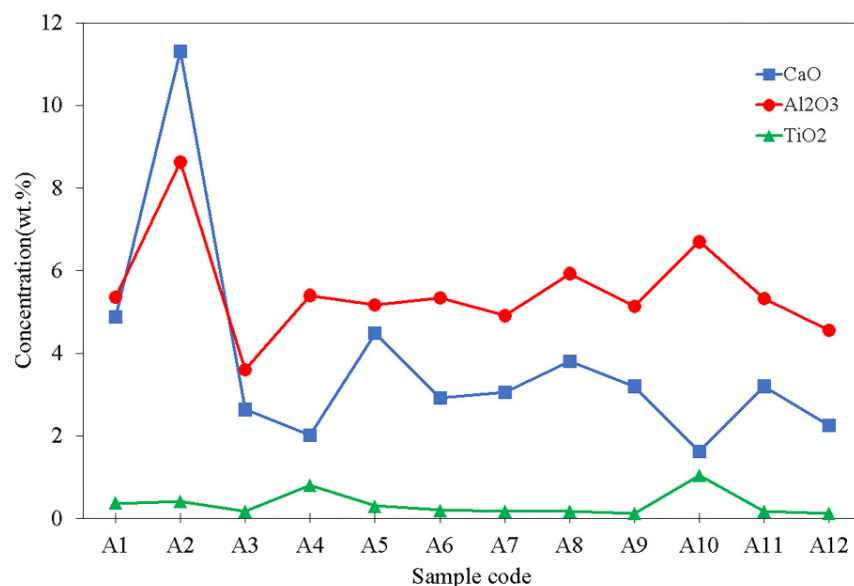
شکل مشاهده می‌شود برای نمونه‌های A4 ، A2 و A10 در این نمودارها انحراف از خط راست مشاهده می‌شود که نشان‌دهنده متفاوت بودن این ۳ نمونه از بقیه نمونه‌ها است.

نتایج آنالیز عنصری لعاب زمینه و رولعابی‌ها

همان‌طور که در تصاویر نمونه‌های آنالیز شده مشاهده می‌شود، در سفال‌های مینایی، نقوش مختلفی بر روی لعاب‌های سفید (کرم)، فیروزه‌ای یا لاجوردی در سفال لاجوردینه ترسیم شده است و همچنین برخی از نواحی نقوش با رنگ‌دانه‌های قرمز یا مشکی قلم‌گیری شده‌اند. علاوه بر این، در برخی از این نمونه‌ها نیز از لایه‌ی طلا به عنوان تزیین سطحی استفاده شده است. نتایج آنالیز عنصری لعاب زمینه‌ی این نمونه‌ها که با استفاده از میکروپیکسی به دست آمده است، در جدول ۲ ارائه شده است. همان‌طور که مشخص است، از نظر ماده‌گذارآور استفاده شده در لعاب زمینه در این نمونه‌ها، اکسید سدیم و اکسید سرب با درصد وزنی متفاوتی مشاهده می‌شود. بر پایه‌ی اندازه‌گیری ترکیبات عنصری لعاب‌ها احتمالاً

اکسید آهن مشاهده می‌شود، به نظر می‌رسد که دو نمونه A4 و A10 نیز با بقیه نمونه‌های آنالیز شده متفاوت باشند و این دو نمونه براساس تغییرات این دو اکسید در گروه جداگانه‌ای قرار گرفته‌اند. همچنین همان‌طور که در شکل ۳ ب نشان داده شده است. براساس تغییرات درصد وزنی اکسید آهن برحسب اکسید تیتانیوم ۹ نمونه از مجموع نمونه‌های آنالیز شده، تقریباً حول یک خط قرار گرفته‌اند و همبستگی بسیار قوی بین این دو اکسید در ترکیبات بدنه مشاهده می‌شود که این همبستگی قوی نشان می‌دهد که ماده اولیه سیلیس استفاده شده در این نمونه‌ها یکسان هستند و با احتمال بسیار زیاد این ۹ نمونه با استفاده از ماده اولیه یکسانی تولید شده‌اند (Hamdan et al., 2014).

در شکل ۴، تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم، اکسید آلومینیم و اکسید تیتانیوم بدنه نمونه‌های آنالیز شده از دژ الموت در یک نمودار خطی نشان داده شده است. در این نمودار، در صورتی که درصد وزنی عناصر در نمونه‌های آنالیز شده یکسان باشند، تغییرات هر عنصر برای تمام نمونه‌های آنالیز شده باید به صورت یک خط تقریباً افقی باشد، اما همان‌طور که در این



شکل ۴. تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم، اکسید آلومینیم و اکسید تیتانیوم بر حسب درصد وزنی در بدنه نمونه‌های آنالیز شده از دژ الموت.

Figure 4. Variations in the weight percentage of calcium oxide, aluminum oxide, and titanium oxide based on weight percentage in the body of the analyzed samples from Alamut Castle.

غالب لعاب‌های زمینه در این سفالینه‌ها از نوع لعاب‌های قلیایی هستند، اما میزان اکسید سدیم موجود در این نمونه‌ها، به دلیل تدفین طولانی مدت در زمین از سطح نمونه‌ها تهی شده است و میزان اکسید سدیم اندازه‌گیری شده در لعاب‌ها کمتر از مقدار واقعی است (Weber et al., 2002). همچنین تعدادی از این نمونه‌ها از نوع لعاب‌های سرب و قلع هستند که این نمونه‌ها شامل نمونه‌های A10، A4 و A12 است (Mason et al., 2001). در دو نمونه از این گروه، اکسید سرب بین ۱۰-۲۸ درصد متغیر است. همچنین در این نمونه‌ها اکسید قلع بین ۵-۲۲ درصد وزنی تغییر می‌کند. علاوه بر این همان‌طور که در جدول ۲ مشاهده می‌شود سیلیس عنصر عمده تشکیل دهنده این لعاب‌ها است که برای تهیه آن از شن و ماسه کف رودخانه‌ها و یا سنگ چخماق (رگه‌های کوارتز خالص) استفاده می‌شده است. همچنین ترکیباتی مانند اکسید کلسیم نیز ممکن است از طریق مواد گدازآور مانند اکسید سدیم و یا از طریق موادی مانند پودر استخوان یا سنگ آهک وارد لعاب‌ها شده باشد. اکسید آلومینیم نیز ممکن است از طریق ناخالصی موجود در سیلیس وارد ترکیبات لعاب شده باشد. عناصر دیگری نیز در ترکیبات لعاب وجود دارند که برخی از آن‌ها مانند اکسید فلزات واسطه مانند اکسید مس، اکسید آهن و اکسید کبالت به‌طور آگاهانه و به‌منظور ایجاد رنگ دلخواه و به‌عنوان رنگ‌دانه به لعاب زمینه اضافه شده‌اند (Mason, 2004, pp130-136). همچنین ترکیبات SO_3 ، P_2O_5 و Cl از جمله ترکیبات شیمیایی هستند که موجودیت این عناصر به دلیل ترکیب شیمیایی محیط خاکی نیز می‌تواند باشد. سولفات‌ها و کلریدها بیشتر به‌صورت ترکیبات با منشأ شوره و یا محیط‌های مرطوب ایجاد می‌شوند که علت این امر به دلیل تدفین طولانی مدت نمونه‌ها در درون بستر خاکی است. در لعاب زمینه دو نمونه لاجوردینه A6 و A7 نیز حدود ۱ درصد اکسید کبالت مشاهده می‌شود و در خطوط رولعابی لاجوردی در نمونه A10 نیز ۲/۷۹ درصد اکسید کبالت مشاهده می‌شود که عامل ایجاد رنگ لاجوردی بوده است. به‌طور کلی در صنعت لعاب‌سازی، کاربرد ۵/۰ تا ۵ درصد مشتقات کبالت، رنگ آبی تا لاجوردی تیره را به‌وجود می‌آورد.

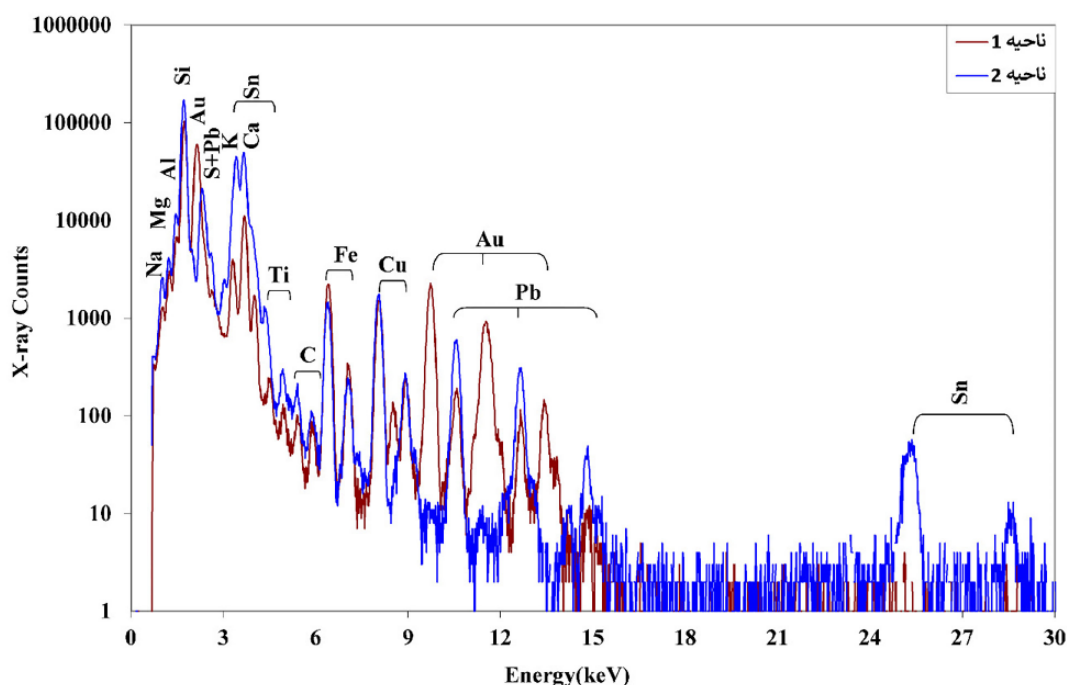
بدین‌صورت که کبالت در فاز مذاب لعاب حل شده و رنگ‌دهی قابل‌توجهی حتی در غلظت‌های بسیار کم را دارا است. علاوه بر خاصیت رنگ‌دهی بسیار بالای اکسید کبالت، مونواکسید کبالت (CoO) نیز به‌عنوان یک گدازآور قوی در لعاب مطرح است که شدت آن با گدازآورهای قلیایی برابری می‌کند. اکسید کبالت در همه پایه‌های لعاب‌های قلیایی - سربی، قلیایی و سربی لاجوردی و آبی تیره و درخشان را به‌وجود می‌آورد (Hamer and Hamer, 2003, pp.70). در شکل ۵ طیف‌های میکروپیکسی به دست آمده از آنالیز دو ناحیه مختلف در نمونه A3 که در شکل ۱ تصویر اپتیکی آن مشاهده می‌شود، ارائه شده است. در این شکل، کلیه عناصر موجود در این نمونه برای دو ناحیه مختلف، نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود اختلاف زیادی بین عناصر موجود در این دو ناحیه وجود دارد. به‌عنوان نمونه در ناحیه ۱ که با مربع قرمز مشخص شده، قله‌های مربوط به عنصر طلا دیده می‌شود در حالی که در ناحیه ۲ که با مربع آبی مشخص شده، قله‌های مربوط به عنصر قلع وجود دارد. برای اینکه به‌طور کامل و دقیق علت اختلاف موجود در این دو طیف به دست آمده را بررسی کنیم، نقشه توزیع عنصری عناصر موجود در دو ناحیه مختلف در نمونه A3 که با استفاده از میکروپیکسی به دست آمده، را بررسی خواهیم کرد. نتایج نقشه توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در این دو ناحیه در شکل ۶ نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل مشاهده می‌شود تفاوت توزیع عنصری بین این دو ناحیه به رنگ‌دانه‌های مختلف استفاده‌شده در این دو ناحیه برمی‌گردد. نقشه توزیع عنصری به دست آمده از آنالیز ناحیه ۱ نشان می‌دهد که در ناحیه زراندود، به‌طور عمده همان‌طور که انتظار می‌رفت عنصر طلا وجود دارد، زیرا با مقایسه تصویر اپتیکی ناحیه ۱ و توزیع نقشه عنصر طلا مشاهده می‌شود که تنها در ناحیه‌ای که در تصویر اپتیکی، لایه‌ی طلا وجود دارد. در تصویر نقشه توزیع عنصری مربوط به طلا، عنصر طلا قابل‌توجه است. همچنین رنگ‌دانه قرمز که برای دورگیری ناحیه زراندود استفاده شده است، به‌طور

جدول ۲. ترکیبات عنصری لعاب زمینه سفالینه‌های مینایی و لاجوردینه دژ الموت به صورت اکسید و بر حسب درصد وزنی (wt%) با استفاده از روش میکروپیکسی (nd= not detected, f= front, b=back).

Table 2. Elemental compositions of the glaze of Mina'i and Lajvardina pottery from Alamut Castle in the form of oxides and in terms of weight percentage (wt%) using the micro-PIXE method (nd= not detected, f= front, b= back).

K ₂ O	Cl	SO ₃	P ₂ O ₅	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	Na ₂ O	Color glaze	Sample
2.06	1.47	0.56	nd	74.64	5.85	1.57	nd	Green	A1f
1.71	0.31	nd	nd	76.59	7.69	0.94	nd	Turquoise	A2f
2.89	0.30	nd	nd	71.80	4.02	1.43	1.34	Green	A3f
1.85	0.18	nd	nd	77.70	5.92	0.47	0.40	Green	A3b
1.61	0.26	5.55	nd	43.26	5.28	0.76	nd	Cream	A4f
1.98	0.45	0.28	nd	47.73	3.41	nd	0.32	Blue	A4b
2.40	0.37	0.32	nd	73.14	5.76	1.02	1.74	Green	A5f
2.92	0.19	nd	nd	74.47	1.40	1.13	2.11	Azure	A6f
2.37	0.65	3.80	nd	71.04	4.82	1.20	1.42	Green	A6b
2.00	0.70	4.73	nd	61.63	6.54	1.81	nd	Azure	A7f
2.36	0.51	0.66	nd	73.48	4.27	1.78	3.81	Green	A8f
2.17	0.33	nd	nd	54.12	1.41	1.28	2.93	Cream	A10f
2.34	1.32	nd	nd	42.71	1.79	1.24	2.43	Azure (overglaze)	A10b
2.52	0.36	nd	nd	60.05	1.17	1.50	3.26	Cream	A10b
1.79	0.15	0.49	nd	82.18	6.69	0.33	nd	Cream	A11f
3.72	0.54	0.89	nd	59.44	5.02	0.89	0.94	Blue	A12f

PbO	SnO ₂	CoO	ZnO	Cu ₂ O	Fe ₂ O ₃	MnO	TiO ₂	CaO	Color glaze	Sample
0.66	nd	nd	nd	2.07	2.41	nd	0.16	8.58	Green	A1f
0.65	nd	nd	nd	2.43	1.75	0.05	0.11	7.80	Turquoise	A2f
4.33	nd	nd	nd	4.62	1.57	0.09	0.13	7.51	Green	A3f
2.63	nd	nd	nd	1.77	2.74	0.05	0.23	6.10	Green	A3b
10.48	22.48	nd	nd	nd	1.57	nd	0.19	8.56	Cream	A4f
28.41	10.77	0.22	nd	0.19	2.00	0.03	0.12	4.09	Blue	A4b
2.42	nd	nd	0.14	3.20	1.41	nd	0.10	7.34	Green	A5f
4.04	nd	1.04	nd	1.44	3.31	0.09	nd	7.65	Azure	A6f
0.36	nd	nd	nd	1.06	2.35	0.07	0.19	10.68	Green	A6b
1.10	nd	1.33	nd	0.28	9.56	1.00	0.39	10.85	Azure	A7f
1.74	nd	nd	nd	3.04	1.40	0.05	0.11	6.70	Green	A8f
24.26	8.09	nd	nd	0.10	0.92	0.05	0.12	4.11	Cream	A10f
22.87	10.40	2.79	0.05	0.43	2.08	0.07	0.17	5.89	Azure (overglaze)	A10b
19.89	5.68	nd	nd	0.13	0.79	0.04	0.12	4.47	Cream	A10b
nd	nd	nd	nd	nd	2.53	nd	0.17	5.68	Cream	A11f
2.12	1.23	nd	0.16	7.79	3.42	0.12	0.20	8.69	Blue	A12f



شکل ۵. طیف‌های میکروپیکسی به‌دست آمده از آنالیز دو ناحیه مختلف در نمونه A3 که در شکل ۱ نشان داده شده است. ناحیه ۱ خارج از لایه زراندود و ناحیه ۲ شامل لایه زراندود است.

Figure 5. Micro-PIXE spectra obtained from the analysis of two different areas in sample A3, as shown in Figure 1. Area 1 is outside the gilded layer, and Area 2 includes the gilded layer.

سفید استفاده‌شده در تزیین این نمونه به‌طور عمده از عنصر قلع تشکیل شده است. بنابراین می‌توان نوع ماده مورد استفاده در ایجاد رنگ‌دانه سفید را اکسید قلع (SnO_2) تعیین کرد (Eastaugh et al., 2004). پژوهشگران عقیده دارند که رایج‌ترین ماده اپک‌کننده^۲ لعاب در دوره اسلامی اکسید قلع است (Mason and Tite, 1997; Tite et al., 2015). اکسید قلع علاوه‌بر اینکه، سبب تولید لعاب اپک سفیدرنگ است، خاصیت الاستیکی لعاب را نیز افزایش داده و مانع تولید ترک‌های مویین در سطح لعاب می‌شود. همچنین، مقاومت شیمیایی لعاب را نیز افزایش می‌دهد. اکسید قلع دمای ذوب و گرانشی لعاب را افزایش داده و سبب تولید رنگ فیروزه‌ای در لعاب‌های دارای اکسید مس می‌شود (Mason and Tite, 1997). قدرت اپک‌کنندگی اکسید قلع را می‌توان به‌سبب میزان حلالیت پایین اکسید قلع در لعاب دانست که باعث ایجاد سطح نامنظم و ناهموار در لعاب می‌شود.

عمده از عنصر آهن تشکیل شده که با توجه به رنگ‌دانه‌های مورد استفاده در ایجاد رنگ قرمز، منبع این رنگ‌دانه می‌تواند، اخرا (Fe_2O_3) باشد (Eastaugh et al., 2004; Holakoe et al., 2019; Innocenti et al., 2024). همچنین در ناحیه ۱ مشاهده می‌شود که لعاب فیروزه‌ای استفاده‌شده در روی بدنه‌ی سفال از عنصر مس تشکیل شده و عنصر مس عامل ایجاد رنگ فیروزه‌ای است (Coccato, Moens, & Vandenabeele, 2017). علاوه‌بر این در تمام ناحیه ۱ عنصر سرب که به‌طور یکنواخت توزیع شده است دیده می‌شود که در اصل از این عنصر به‌عنوان گدازآور استفاده شده است.

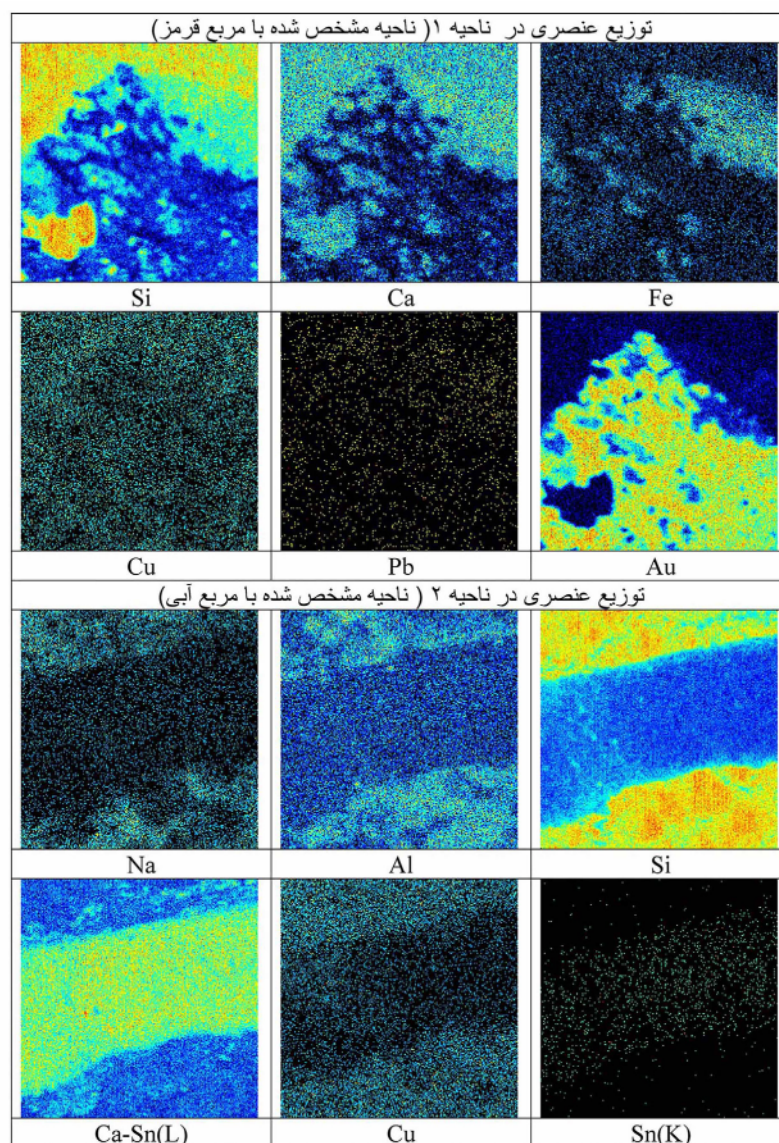
دیگر عناصر مشاهده‌شده در این ناحیه که عناصری مانند سیلیسیم، کلسیم و پتاسیم هستند نیز مربوط به لعاب زمینه هستند. همچنین توزیع عنصری به دست آمده از آنالیز ناحیه ۲ نشان می‌دهد که در رنگ‌دانه

پتاسیم مشاهده می‌شود که مربوط به لعاب زمینه هستند. همچنین در توزیع عنصری به دست آمده از آنالیز ناحیه ۲ مشاهده می‌شود در ناحیه‌ای که عنصر قلع وجود دارد، عناصر سدیم، آلومینیم، سیلیسیم و مس کمتر شده است. این کاهش به دلیل جذب Xهای مشخصه توسط عنصر قلع است. در توزیع عنصری نشان داده شده در شکل ۶ هر چه فراوانی تعداد Xهای مشخصه بیشتر باشد تصویر ایجاد شده دارای رنگ روشن‌تری است و هر چه فراوانی تعداد Xهای مشخصه کمتر باشد، تصویر ایجاد شده تیره‌تر است.

ذرات ریز اکسید قلع درون لعاب، با میکروسکوپ نیز قابل مشاهده است. علاوه بر اکسید قلع، عوامل دیگری نیز سبب ایجاد سطح اپک می‌شوند که عبارتند از: حباب‌های هوای موجود در لعاب، کوارتز و اجزاء فلدسپار نامحلول در لعاب، و سیلیکات‌های نامحلول مانند سیلیکات منیزیم-کلسیم^۳ و سیلیکات کلسیم^۴ که در طول حرارت ایجاد می‌شوند. این موارد، در مقایسه با اکسید قلع از قدرت اپک‌کنندگی پایین‌تری برخوردار هستند (Mason and Tite, 1997; Iñáñez et al., ۲۰۱۰). در این ناحیه نیز عناصری دیگری مانند سدیم، آلومینیم، سیلیسیم، کلسیم و

شکل ۶. توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در دو ناحیه مختلف از نمونه A۳: (الف) ناحیه اول که در شکل ۱ با مربع قرمز نشان داده شده است، (ب) ناحیه ۲ که در شکل ۱ با مربع آبی نشان داده شده است. ابعاد نواحی آنالیز شده در روی نمونه حدود ۲/۵×۲/۵ میلی‌متر است.

Figure 6. Elemental distribution of some elements in two different areas of sample A3, shown in the optical image with Area 1 marked by a red square and Area 2 marked by a blue square. The dimensions of the analyzed areas in the sample are approximately 2.5×2.5 mm.



جدول ۳. درصد وزنی عناصر موجود در رنگ‌دانه‌های قرمز، سفید و ناحیه زراندود در نواحی ۱ و ۲ نمونه A3. همچنین ترکیبات عنصری لعاب زمینه روی نمونه، پشت نمونه و بدنه نمونه ۳ برحسب درصد وزنی برای مقایسه در این جدول ارائه شده است.

Table 3. Weight percentage of elements present in the red, white, and gilded areas in Areas 1 and 2 of sample A3. Additionally, the elemental compositions of the glaze on the front, back, and body of sample 3 are presented in this table for comparison.

بدنه سفال body	لعاب سبز (پشت) Green glaze (back)	لعاب فیروزه‌ای (رو) Turquoise glaze (front)	رنگ‌دانه سفید White pigment	رنگ‌دانه قرمز Red pigment	ناحیه زراندود Gilded area	Elements (wt%)
2.01	0.37	1.34	-	0.56	-	Na ₂ O
3.1	0.47	1.43	-	1.63	0.96	MgO
3.6	5.92	4.01	1.55	3.53	1.2	Al ₂ O ₃
86.13	77.69	71.80	15.57	65.76	39.99	SiO ₂
-	-	-	2.32	0.62	-	SO ₃
-	0.18	0.30	0.54	0.51	0.38	Cl
1.05	1.84	2.90	-	1.69	2.13	K ₂ O
2.64	6.11	7.51	4.72	9.67	8.03	CaO
0.18	0.23	0.13	0.19	0.20	0.15	TiO ₂
0.03	0.05	0.09	-	0.07	0.079	MnO
1.17	2.76	1.55	0.97	7.56	1.63	Fe ₂ O ₃
0.09	1.77	4.62	1.05	3.78	4.88	Cu ₂ O
-	-	-	61.13	-	-	SnO ₂
-	-	-	-	-	36.53	Au ₂ O ₃
-	2.63	4.33	10.21	4.41	4.00	PbO

و منیزیم نیز وجود دارد. همچنین در بدنه‌ی این سفالینه مقدار کمی نیز اکسیدهای آهن، تیتانیم، مس و منگنز وجود دارد که از ناخالصی‌های موجود در کانی سیلیس وارد ترکیبات عنصری بدنه شده است.

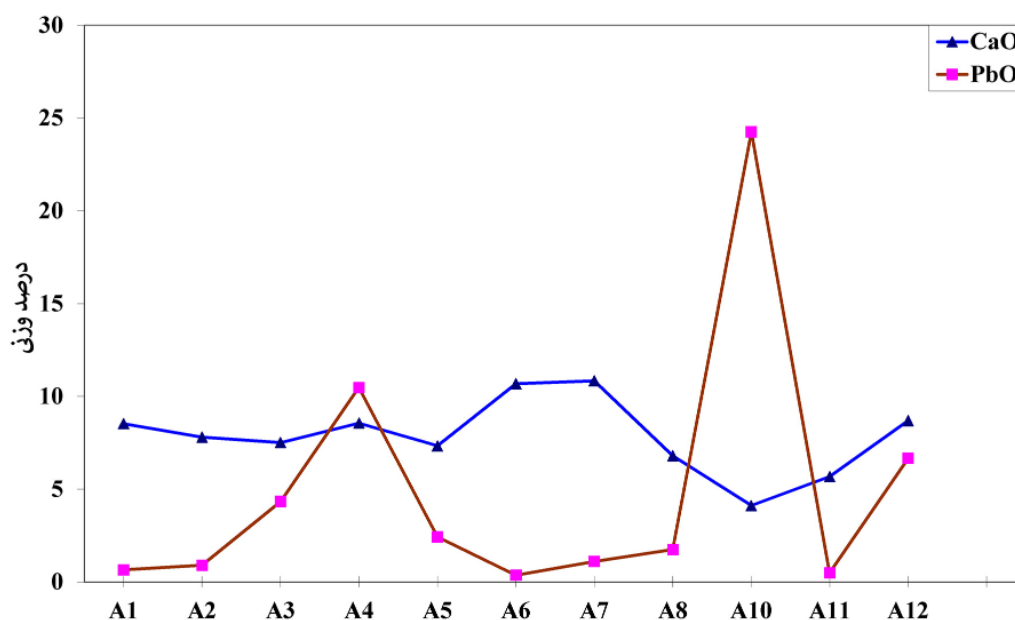
با بررسی نتایج مربوط به ترکیبات عنصری لعاب زمینه نمونه‌های آنالیزشده در این پژوهش که در جدول ۲ ارائه شده است، مشخص است که در همه نمونه‌های مورد بررسی، اکسید کلسیم و اکسید سرب به‌عنوان استحکام‌بخش و گدازآور استفاده شده است. در شکل ۷ تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم و اکسید سرب در این نمونه‌ها رسم شده است. همان‌طور که در این شکل مشخص است، در همه این نمونه‌ها (به‌جز دو نمونه لاچوردینه A4 و A12) درصد وزنی اکسید کلسیم همواره بسیار بیشتر از درصد وزنی اکسید سرب است. اما با بررسی دو نمونه ۴ و ۱۲ مشخص است که درصد

مقدار درصد وزنی عناصر موجود در رنگ‌دانه‌های قرمز، سفید و ناحیه زراندود در نواحی ۱ و ۲، همچنین ترکیبات عنصری لعاب‌های سطح داخلی، سطح بیرونی و بدنه نمونه A3 برحسب درصد وزنی در جدول ۳ ارائه شده است. همان‌طور که در این جدول دیده می‌شود، ناحیه زراندود با درصد وزنی بالایی از طلا تشکیل شده است. همچنین در رنگ‌دانه قرمز حدود ۸ درصد اکسید آهن و در رنگ‌دانه سفید حدود ۶۰ درصد، اکسید قلع وجود دارد. علاوه‌بر این مشخص است که عامل رنگ لعاب فیروزه‌ای روی نمونه A3، اکسید مس است که درصد وزنی آن در این نمونه حدود ۵ درصد و عامل لعاب سبز رنگ پشت نمونه‌ی اکسید آهن و اکسید مس هستند. همچنین همان‌گونه که در این جدول مشاهده می‌شود، بدنه این نمونه به‌طور عمده از اکسید سیلیسیم تشکیل شده است. که در آن عناصری مانند اکسید آلومینیم، اکسید سدیم

از این نمونه‌ها می‌توان به دست آورد. با استفاده از آنالیز نمونه‌ها از سطح مقطع، اندازه‌گیری ضخامت لعاب‌های زمینه در این نمونه‌ها امکان‌پذیر خواهد بود. در شکل ۸ توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در بدنه و لعاب زمینه نمونه A12 که از سطح مقطع آنالیز شده است، نشان داده شده است. همان‌طور که در این شکل با پیکان‌های قرمز رنگ مشاهده می‌شود، با توجه به نقشه توزیع عنصری عناصر سرب و مس متوجه خواهیم شد که این عناصر به‌طور عمده و غالب در لعاب زمینه وجود دارند. از طرف دیگر، با توجه به اینکه ابعاد آنالیز در راستای افقی (X) و عمودی (Y) در حدود ۲۵۰۰ میکرومتر است، ضخامت لعاب زمینه در این نمونه حدود ۶۰۰ میکرومتر تخمین زده می‌شود. آنالیز نمونه مختلف از سطح مقطع در این پژوهش نشان داد که ضخامت لعاب‌های زمینه در این نمونه از ۱۰۰ تا ۶۰۰ میکرومتر متغیر است. همچنین با توجه به توزیع عنصری کروم در شکل ۸، می‌توان ضخامت لایه‌های نقاشی‌شده در زیر لعاب را نیز مشاهده و محاسبه کرد. با توجه به ابعاد اسکن،

وزنی اکسید سرب این دو نمونه بیشتر از درصد وزنی اکسید کلسیم است. همچنین همان‌طور که در جدول ۲ مشخص است در این دو نمونه از اکسید قلع به‌عنوان ماده اپک‌کننده در ترکیبات لعاب زمینه استفاده شده است. آنالیز عنصری این دو نمونه نشان می‌دهد که در نمونه ۴ و ۱۲ مقدار اکسید قلع به ترتیب ۲۲/۵ و ۸ درصد است. بنابراین نوع لعاب‌های به‌کار رفته در این دو نمونه با بقیه نمونه‌ها متفاوت است (Tite, & Watson, 2018). از طرفی، همان‌گونه که در بالا ارائه شد دو نمونه ۴ و ۱۲ و همچنین نمونه ۲ از نظر ترکیبات بدنه نیز با دیگر نمونه‌های آنالیز شده تفاوت داشتند. بنابراین با توجه به نوع لعاب زمینه و همچنین ترکیبات عنصری بدنه می‌توان به این نتیجه رسید که سفال‌های کشف شده در دژ الموت وارداتی بوده و شاید در مراکز مختلف و با دستور ساخت‌های متفاوت در کارگاه‌های پراکنده تولید شده باشند.

علاوه‌بر مشخص کردن ترکیبات عنصری بدنه، لعاب زمینه و تعیین رنگ‌دانه‌های استفاده‌شده در نقاشی‌ها با روش میکروپیکسی، اطلاعات مهم دیگری نیز



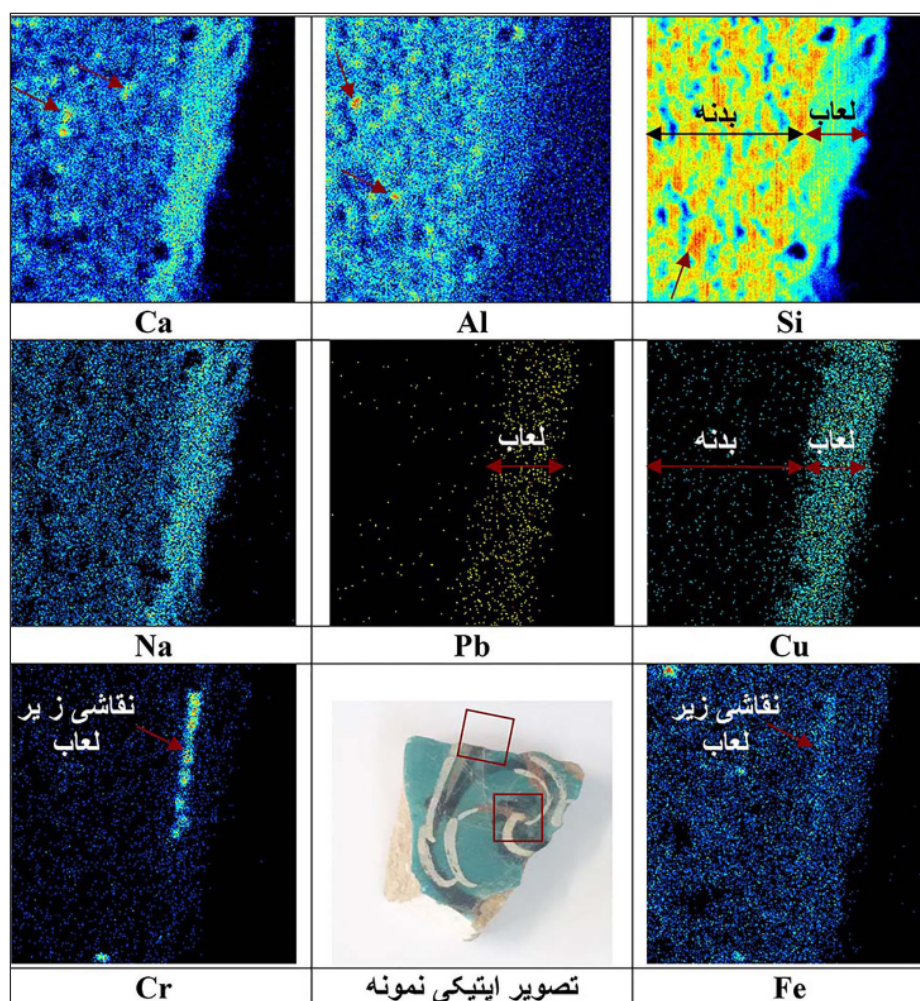
شکل ۷. تغییرات درصد وزنی اکسید کلسیم و اکسید سرب موجود در لعاب زمینه در نمونه‌های آنالیز شده.

Figure 7. Variations in the weight percentage of calcium oxide and lead oxide present in the glaze of the analyzed samples.

اندازه‌گیری ضخامت لایه زراندود

در سفال‌های مینایی زراندود در دژ الموت، نقوش مختلف با شیوه‌ی نقاشی بر روی لعاب سفید یا فیروزه‌ای ترسیم‌شده و سپس برخی از نواحی این نقوش با لایه‌ی طلاکاری شده‌اند. بنابراین، از نظر فن‌شناسی لایه‌ی طلاکاری‌شده خارجی‌ترین و سطحی‌ترین لایه است که بر روی لعاب فیروزه‌ای یا سفید و همچنین گاهی اوقات بر روی لایه‌های نقاشی‌شده قرار گرفته است. همان‌طور که قبلاً نیز اشاره شد، با استفاده از روش micro-RBS ما قادر هستیم تا ضخامت لایه‌های طلای به کار رفته در

ضخامت لایه‌ی نقاشی در ناحیه‌ای که دارای رنگ‌دانه مشکی و کرومیت است، حدود ۱۰۰ میکرومتر است. نکته حائز اهمیت که باید در اینجا به آن اشاره شود، این است که همان‌طور که در شکل ۸ نیز در توزیع مربوط به عنصر کروم دیده می‌شود، این عنصر در نمونه‌ی نقاشی با رنگ مشکی، زیر لعاب و روی بدنه قرار گرفته است (Holakooei et al., 2019). فناوری منحصر به فردی که در برخی از سفال‌های مینایی دژ الموت به کار رفته است حضور نقاشی زیرلعابی (نقاشی با رنگ مشکی) در کنار نقاشی رولعابی (نقاشی با رنگ سفید و قرمز) در یک نمونه است.



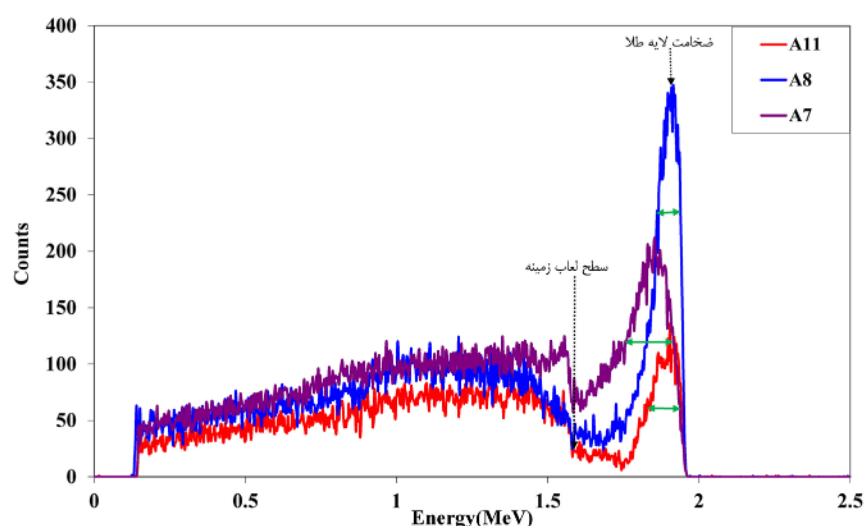
شکل ۸. توزیع عنصری برخی از عناصر موجود در بدنه و لعاب زمینه نمونه A12 از سطح مقطع.

Figure 8. Elemental distribution of some elements in the body and glaze of sample A12 from the cross-section.

لعب و لایه‌ی طلاکاری شده است، نشان می‌دهد که طلای استفاده شده حدود ۱/۵ میکرومتر در داخل لعب نفوذ کرده است که علت این نفوذ را می‌توان به گرم کردن نمونه‌ها نسبت داد. در جدول ۴ همچنین ترکیبات اصلی تشکیل دهنده این دو لایه بر حسب درصد اتمی نشان داده شده است. ترکیب اصلی لعب مورد استفاده در صنعت سرامیک سیلیس (SiO_2) است. همچنین همان‌طور که در تصویر اپتیکی نمونه A8 دیده می‌شود، رنگ لعب زمینه‌ی این نمونه فیروزه‌ای است و عامل رنگ این لعب، عنصر مس است. همچنین برای کاهش نقطه‌ی ذوب لعب یکی از عناصری که در این نمونه استفاده شده است، عنصر سرب است. بنابراین ترکیب به دست آمده برای این دو لایه کاملاً با فرمول شیمیایی مورد استفاده برای ایجاد لعب مورد استفاده، تطابق دارد. لایه چهارم نیز که لایه کاملاً ضخیم است، ترکیب لعب زمینه است. همچنین نتایج محاسبات برای نمونه A2 نیز در جدول ۴ ارائه شده است. محاسبات نشان می‌دهد که لایه‌ی اول که مربوط به لایه‌ی طلا است، ضخامتی در حدود ۵۶۰ نانومتر دارد. همچنین ضخامتی که طلای ناشی از لایه‌ی زراندود در آن نفوذ کرده حدود ۰/۷ میکرومتر است.

ناحیه زراندود را اندازه‌گیری نماییم (Albéric et al., 2015; Fourdrin et al., 2016). در شکل ۹ طیف‌های micro-RBS به دست آمده از سه نمونه‌ی مختلف از نمونه‌های آنالیز شده از دژ الموت با یکدیگر مقایسه شده است. در این شکل مشخص است که ضخامت لایه طلا متناسب با پهنای قله نشان دهنده لایه‌ی طلا، تغییر می‌کند و هر چه ضخامت لایه‌ی طلا بیشتر باشد، پهنای قله‌ی مربوط به طلا که با پیکان سبزرنگ نشان داده شده نیز افزایش می‌یابد. همان‌طور که در شکل ۹ مشخص است، ضخامت لایه‌ی طلا در هر سه نمونه متفاوت است زیرا پهنای قله در این سه نمونه کاملاً با یکدیگر تفاوت دارند. همچنین این شکل نشان می‌دهد که هرچه ضخامت لایه‌ی طلا بیشتر باشد، طلای به کار رفته در سطح، در اثر فرایندهای حرارتی تا عمق بیشتری در لعب نفوذ می‌کند.

نتایج اندازه‌گیری و محاسبه‌ی ضخامت لایه‌ی طلا و میزان نفوذ آن در لعب زمینه برای دو نمونه در جدول ۴ ارائه شده است. نتایج این محاسبات برای نمونه A8، نشان می‌دهد که لایه‌ی اول که مربوط به لایه‌ی طلا است، ضخامتی در حدود ۳۲۰ نانومتر دارد. لایه دوم و سوم که مربوط به ناحیه‌ی مشترک



شکل ۹. مقایسه طیف‌های micro-RBS به دست آمده از لایه زراندود در سه نمونه مختلف.

Figure 9. Comparison of micro-RBS spectra obtained from the gilded layer in three different samples.

جدول ۴. نتایج اندازه‌گیری و محاسبه ضخامت لایه طلا و میزان نفوذ آن در لعاب زمینه برای دو نمونه A2 و A8.

Table. Measurement results and calculation of the thickness of the gold layer and its penetration into the glaze for two samples, A8 and A2.

عناصر تشکیل دهنده لایه (درصد اتمی). Elements forming the layer (atomic percentage).					ضخامت لایه طلا (نانومتر). Gold Layer Thickness (nanometers).	ضخامت لایه. ($\times 10^{15}$ atom/cm ²) Layer Thickness ($\times 10^{15}$ atom/cm ²).	ترتیب لایه. Layer Order.	کد نمونه. Sample Code.
O	Si	Pb	Cu	Au				
-	-	-	-	100	320	1900	لایه اول (لایه خالص طلا). First Layer (Pure Gold Layer).	A8
40	18	2	24	16	-	3200	لایه دوم (لعاب زمینه با ناخالصی طلا). Second Layer (Base Glaze with Gold Impurities).	
64	13	2	11	10	-	2500	لایه سوم (لعاب زمینه با ناخالصی طلا). Third Layer (Base Glaze with Gold Impurities).	
64	36	2.5	2	0	-	130000	لایه چهارم (لعاب زمینه). Fourth Layer (Base Glaze).	
-	-	-	-	100	560	3000	لایه اول (لایه خالص طلا). First Layer (Pure Gold Layer).	A2
20	18	2	30	30	-	3300	لایه دوم (لعاب زمینه با ناخالصی طلا). Second Layer (Base Glaze with Gold Impurities).	
60	35	4	1	0	-	130000	لایه سوم (لعاب زمینه). Third Layer (Base Glaze).	

نتیجه‌گیری

همان‌طور که در جدول ۱ مشاهده می‌شود، بدنه نمونه‌های مورد بررسی از نظر ترکیبات تفاوت‌هایی با یکدیگر دارند. این تفاوت در ترکیبات بدنه نشان‌دهنده این است که در ساخت سفال‌های مینایی از مواد اولیه متفاوتی استفاده شده است. همچنین، این احتمال نیز وجود دارد که نمونه‌های به دست آمده در این منطقه از مکان‌های مختلفی به این محوطه وارد شده باشند. بر پایه‌ی نتایج به دست آمده در این پژوهش و مقایسه آن با نتایج گزارش شده از سفال‌های

مینایی مورد توجه پژوهشگران ایرانی و خارجی مورد مطالعه که نتایج آن منتشر شده، می‌توان به این نتیجه رسید که در ساخت سفال‌های این محوطه به‌جز نمونه A2، در بقیه نمونه‌ها از خمیرسنگ و خاک رس غنی از آلومینا استفاده شده است. درصد وزنی اکسید کلسیم نمونه‌های آنالیز شده بسیار پایین است که این نشان‌دهنده‌ی این است که از سیلیس غیرآهکی در این نمونه‌ها استفاده شده است. اما در نمونه A2 از منابع خاک رس آهکی استفاده شده است. نتایج آنالیز رنگ‌دانه‌های به کار رفته در نقاشی‌های تزئینی نشان می‌دهد که عامل رنگ قرمز، عنصر

Albéric, M., Müller, K., Pichon, L., Lemasson, Q., Moignard, B., Pacheco, C., Reiche, I. (2015). Non-invasive quantitative micro-PIXE-RBS/EBS/EBS imaging reveals the lost polychromy and gilding of the Neo-Assyrian ivories from the Louvre collection. *Talanta*, 137, 100-108. doi:https://doi.org/10.1016/j.talanta.2015.01.029.

Beck, L., Pichon, L., Moignard, B., Guillou, T., & Walter, P. (2011). IBA techniques: Examples of useful combinations for the characterisation of cultural heritage materials. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*: 269(24), 2999-3005.

Coccato, A., Moens, L., & Vandenberghe, P. (2017). On the stability of mediaeval inorganic pigments: a literature review of the effect of climate, material selection, biological activity, analysis and conservation treatments. *Heritage Science*, 5(1), 12. doi:10.1186/s40494-017-0125-6.

Choubak, H., (2009). Alamut Castle (Eagle's Nest), <http://www.chn.ir/NSite/FullStory/News/?Id=68476&Serv=0&SGR=0>.

Daftary, F., (2007). *The Ismā'īlīs: Their History and Doctrines* (Second ed.). Cambridge: Cambridge University Press.

De Bonis, A., D'Angelo, M., Guarino, V., Massa, S., Anaraki, F. S., Genito, B., & Morra, V. (2017). Unglazed pottery from the masjid-i jom'e of Isfahan (Iran): technology and provenance. *Archaeological and Anthropological Sciences*, 9(4), 617-635. doi:10.1007/s12520-016-0407-z.

Eastaugh, N., Walsh, V., Chaplin, T., & Siddall, R. (2004). *The Pigment Compendium: A Dictionary of Historical Pigments*, Taylor & Francis.

Fernandes, F., Niekaszewicz, L. A. B., Amaral, L., & Dias, J. F. (2018). Evaluation of detector efficiency through GUPIXWIN H value. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*: 417, 56-59.

Fourdrin, C., Pagès Camagna, S., Pacheco, C., Radepon, M., Lemasson, Q., Moignard, B., . . .

آهن و عامل رنگ سفید، عنصر قلع است. همچنین برای رنگدانه مشکی در برخی از این نمونه‌ها عنصر کروم و آهن به‌عنوان عامل رنگ شناسایی شد که نشان‌دهنده استفاده از ترکیب معدنی کرومیت است. علاوه بر این، عامل رنگ لاجوردی در لعاب‌های زمینه سفال‌های لاجوردینه و رولعابی‌های مینایی عنصر کبالت تشخیص داده شد. همچنین مشخص شد که عامل رنگ لعاب‌های فیروزه‌ای مورد استفاده در نمونه‌ها، عنصر مس و عامل رنگ لعاب سبزرنگ، ترکیب عنصر آهن و مس است. نتایج به دست آمده از لایه‌ی زراندود در نمونه‌های دژ الموت نشان می‌دهد که ضخامت لایه‌ی زراندود در نمونه‌ها متفاوت هستند و ضخامت آن‌ها بین ۳۲۰ تا ۸۴۰ نانومتر متغیر است.

سپاسگزاری

نویسندگان مقاله از همراهی خانم دکتر حمیده چوبک (سرپرست کاوش‌های باستان‌شناسی دژ الموت قزوین) به دلیل تحویل نمونه‌های مورد نیاز در انجام این پژوهش، کمال تشکر و قدردانی را دارند. همچنین لازم است از پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای و کلیه همکاران آزمایشگاه واندوگراف که شرایط مناسب برای آنالیز این نمونه‌ها را فراهم کردند، تشکر و قدردانی شود.

حامیان مالی و معنوی

آنالیز با باریکه‌ی یونی در این پژوهش با حمایت پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای در آزمایشگاه واندوگراف انجام شده است.

پی‌نوشت‌ها

1. Stonepaste .
2. Opacifier .
3. Diopside .
4. Wollastonite .

منابع

Aga-Oglu, M. (1946). The Origin of the Term Mina; and Its Meanings. *Journal of Near Eastern Studies*, 5(4), 241-256.

- Jeammet, V. (2016). Characterization of gold leaves on Greek terracotta figurines: A PIXE-RBS study. *Microchemical Journal*, 126, 446-453. doi:https://doi.org/10.1016/j.microc.2015.12.030.
- Hamdan, M. A., Martinez, S. M., Garcia Vallès, M. T., Nogués, J. M., Hassan, F. A., Flower, R. J., Ebrahim, E. S. (2014). Ancient Egyptian Pottery from the Subsurface Floodplain of the Saqqara-Memphis Area: Its Mineralogical and Geochemical Implications. *Archaeometry*, 56(6), 987-1008. doi:doi:10.1111/arc.12075.
- Hamer, F., & Hamer, J. (2003). *The potter's dictionary of materials and techniques*, London: A. & C.
- Henderson, J. (2000). *The Science and Archaeology of Materials: An Investigation of Inorganic Materials*: Routledge.
- Holakooei, P., de Lapérouse, J.-F., Carò, F., Röhrs, S., Franke, U., Müller-Wiener, M., & Reiche, I. (2019). Non-invasive scientific studies on the provenance and technology of early Islamic ceramics from Afrasiyab and Nishapur. *Journal of Archaeological Science: Reports*, 24, 759-772. doi:https://doi.org/10.1016/j.jasrep.2019.02.029.
- Holakooei, P., Petrucci, F. C., Tassinari, R., & Vaccaro, C. (2013). Application of WDXRF in the provenance studies of Persian haft rang tiles: a statistical approach. *X-Ray Spectrometry*, 42(2), 105-115. doi:10.1002/xrs.2441.
- Innocenti, S., Quintero Balbás, D., Galeotti, M., Cagnini, A., Porcinai, S., & Striova, J. (2024). Historical Pigments and Paint Layers: Raman Spectral Library with 852 nm Excitation Laser. *Minerals*, 14, 557. doi:10.3390/min14060557.
- Iñáñez, Javier G., Bellucci, Jeremy J., Enrique Rodríguez-Alegría, Richard A., William McDonough, Speakman, Robert J., (2010). Romita pottery revisited: a reassessment of the provenance of ceramics from Colonial Mexico by LA-MC-ICP-MS, *Journal of Archaeological Science*, 37(11), 2698-2704.
- Jeynes, C., & Colaoux, J. L. (2016). Thin film depth profiling by ion beam analysis. *Analyst*, 141(21), 5944-5985. doi:10.1039/c6an01167e.
- Johansson, S. A. E., & Campbell, J. L. (1989). *PIXE: A novel technique for elemental analysis*, New York, John Wiley & Sons.
- Kambakhshfard, S. (2000). *The Pottery in Iran from the beginning of Neolithic to contemporary*, Tehran, Iran: Ghoghnoos (In Persian).
- [کامبخش‌فرد، سیف‌الله (۱۳۷۹). سفال و سفال‌گری در ایران از ابتدای نوسنگی تا دوران معاصر، تهران، انتشارات ققنوس].
- Koss, K., Blythe, M.C., Chase, E.S., Smith, D. (2009), *Analysis of Persian Painted Minai Ware*, in *Scientific Research on Historic Asian Ceramics*, Proceedings of the Fourth Forbes Symposium at the Freer Gallery of Art, Washington D.C.
- Lane, A. (1958). *Early Islamic Pottery: Mesopotamia, Egypt and Persia*: Faber & Faber.
- Mason, R. B. (1997). *Shine Like the Sun: Lustre-painted and Associated Pottery from the Medieval Middle East*: Mazda Publishers.
- Mason, R. B., Tite, M. S., Paynter, S., & Salter, C. (2001). Advances in Polychrome Ceramics in the Islamic World of the 12th Century AD. *Archaeometry*, 43(2), 191-209. doi:10.1111/1475-4754.00014.
- Mason, R. B., Tite, M. S. (2017). The beginnings of tin-opacification of pottery glazes, *Archaeometry*, 39(1), 41-58.
- Matin, M., Tite, M., & Watson, O. (2018). On the origins of tin-opacified ceramic glazes: New evidence from early Islamic Egypt, the Levant, Mesopotamia, Iran, and Central Asia. *Journal of Archaeological Science*, 97, 42-66. doi:https://doi.org/10.1016/j.jas.2018.06.011.
- Nastasi, M., Mayer, J., & Wang, Y. (2014). *Ion Beam Analysis: Fundamentals and Applications*. Boca Raton: CRC Press.

Pincé, P., Braekmans, D., Lycke, S., & Vandenabeele, P. (2019). Ceramic Production in the Kur River Basin (Fars, Iran) During the Middle to Late Second Millennium bce: A Geochemical and Technological Characterization. *Archaeometry*, 61(3), 556-573. doi:10.1111/arcm.12451.

Sotūdeh, M., (1955). Alamut Castle, Farhang e Iran Zamin. No. 3, 5-21. [In Persian].

[ستوده، منوچهر (۱۳۳۴). قلعه الموت - بلدة الاقبال، نشریه فرهنگ ایران زمین، شماره ۳، ۲۱-۵].

Tite, M., Watson, O., Pradell, T., Matin, M., Molina, G., Domoney, K., Bouquillon, A., (2015). Revisiting the beginnings of tin-opacified Islamic glazes, *Journal of Archaeological Science*, 57, 80-91.

Tite, M. S., Wolf, S., & Mason, R. B. (2011). The technological development of stonepaste ceramics from the Islamic Middle East. *Journal of Archaeological Science*, 38(3), 570-580.

Weber, G., Strivay, D., Martinot, L., & Garnir, H. P. (2002). Use of PIXE-PIGE under variable incident angle for ancient glass corrosion measurements. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*:189(1), 350-357. doi:https://doi.org/10.1016/S0168-583X(01)01085-0.

Wilson J. Christy (1992) A History of Iranian Art, Translated by Abdullah Faryar, Tehran: Yasavoli [In Persian].

[ویلسن، ج. کریستی (۱۳۷۰). تاریخ صنایع ایران، ترجمه: عبدالله فریار، انتشارات یساولی، تهران].

Yazdani, M., Emami, S. M. A., Ahmadi, H., Lamehi-Rachti, M., Abdollah Khan Gorji, M., & Agha-Aligol, D. (2017). A Technological Study of Making and Executing Raised and Gilded Ornaments on Mina'i Wares from the Medieval Islamic Period in Iran. *Journal of Iranian Handicrafts*, 1(1), 5-20. (In Persian).

[یزدانی، ملیکا؛ امامی، سید محمد امین؛ احمدی، حسین؛ لامعی رشتی، محمد؛ عبدالله خان گرجی، مهناز؛ آقاعلی گل، داود (۱۳۹۶). مطالعه شیوه ساخت و اجرای

تزیینات برجسته و زراندود در سفال مینایی دوران میانی اسلامی در ایران، هنرهای صناعی ایران، شماره ۱، ۵-۵].

Yazdani, M., Ahmadi, H., Emami, S. M. A. and Abdollahkhan Gorji, M. (2015). Chronology of Mina'i Ware based on in Scripted Samples. *Journal of Fine Arts: Visual Arts*, 20(3), 45-56. doi: 10.22059/jfava.2015.56380 [In Persian].

[یزدانی، ملیکا؛ احمدی، حسین؛ امامی، سید محمد امین؛ عبدالله خان گرجی، مهناز (۱۳۹۴). گاهنگاری سفال مینایی براساس نمونه‌های کتیبه‌دار، نشریه هنرهای زیبا- هنرهای تجسمی، دوره ۲۰، شماره ۳، ۴۵-۵۶].